

RIVM rapport 609021 015

**Aanvullend onderzoek naar concentraties koper,
chromium en arseen in luchtstof, bodem en gras bij
houtverduurzamingsbedrijven in Nederland**

*M.G. Mennen, T. Knol-de Vos, F. Fortezza., A.C.W.
van de Beek, R. Ritsema, S. Piso en J.J.G. Kliest*

oktober 1998

Dit onderzoek werd verricht in opdracht en ten laste van Hoofdinspecteur van de Volksgezondheid voor de Milieuhygiëne, in het kader van project 609021, Raamproject Algemene Ad-hoc Ondersteuning Inspectie.

Abstract

Supplementary to the study on the emissions and concentrations of copper, arsenic and chromium in air near three wood preservation plants in the Netherlands, we measured concentrations of these elements in coarse dust particles near wood preservation plants. Measurements were taken near a stack of stored impregnated wood in a dry weather period when wind speeds were high. In addition, soil and grass samples, taken in the vicinity of two wood preservation plants, were analysed for copper, arsenic and chromium. Particle mass concentrations varied from 40 to 80 $\mu\text{g m}^{-3}$, while concentrations of copper, arsenic and chromium were in the range of 5 to 50 ng m^{-3} , which compares well with the results of the measurements in the previous study performed under wet weather and low wind-speed conditions. The concentrations in most of the soil and grass samples compared well with background levels in the Netherlands. This shows that dispersion and deposition of particles from the plants do not lead to detectable copper, arsenic and chromium contamination of the soil and grass near the plants, which is in agreement with the results of model calculations in the previous study. At one location, high copper, arsenic en chromium concentrations were found in the soil; however, these appeared to result from earlier plant activity. The results of the additional air, soil and grass measurements confirm the conclusions of the previous study that both the health risks for residents in the surroundings and the contamination of the environment due to emissions from the wood preservation plants are low.

Inhoud

Samenvatting	4
1. Inleiding	5
2. Uitvoering	6
<i>2.1 Aanvullende stofconcentratietingen</i>	<i>6</i>
<i>2.2 Aanvullend bodem- en grasonderzoek</i>	<i>7</i>
3. Resultaten	8
<i>3.1 Stofmetingen</i>	<i>8</i>
<i>3.2 Bodem- en grasonderzoek</i>	<i>9</i>
4. Bespreking resultaten	10
<i>4.1 Stofmetingen</i>	<i>10</i>
<i>4.2 Bodem- en grasonderzoek</i>	<i>12</i>
5. Conclusies	13
Literatuur	15
Bijlage 1 Schematische weergave van het terrein van bedrijf A	16
Bijlage 2 Schematische weergave van het terrein van bedrijf C	17
Bijlage 3 Overzicht van de gebruikte meetmethoden	18
Bijlage 4 Verzendlijst	20

Samenvatting

Dit rapport betreft een aanvullend onderzoek naar de luchtconcentraties en de verspreiding van koper, arseen en chroom bij twee van de circa dertig houtverduurzamingsbedrijven in Nederland. Het onderzoek is uitgevoerd in opdracht van de Hoofdinspecteur van de Volksgezondheid voor de Milieuhygiëne en is een aanvulling op een eerder verricht, uitgebreider onderzoek naar emissies en concentraties van koper, arseen en chroom in lucht bij houtverduurzamingsbedrijven (RIVM rapport nr. 609021012).

Het aanvullend onderzoek had tot doel meer duidelijkheid te krijgen omtrent enkele onzekerheden in de conclusies van het eerder uitgevoerd onderzoek. Het aanvullend onderzoek bestond uit concentratiemetingen van grof stof en daarin aanwezig koper, chroom en arseen bij de houtopslag van een houtverduurzamingsbedrijf tijdens een periode van warm, droog weer met hoge windsnelheden (zo'n periode had zich tijdens het eerder uitgevoerd onderzoek niet voorgedaan). Daarnaast zijn enkele bodem- en grasmonsters genomen in de directe omgeving van twee houtverduurzamingsbedrijven. Deze monsters zijn geanalyseerd op koper, chroom en arseen. Doel hiervan was de resultaten van verspreidings- en depositieberekeningen uit het voorafgaande onderzoek te verifiëren.

Bij de grof stof metingen bij droog, winderig weer werden benedenwinds van de houtopslag concentraties aërosoldeeltjes en daarin aanwezig koper, arseen en chroom gemeten die vergelijkbaar waren met de waarden die in het eerder onderzoek zijn gemeten tijdens meer vochtige dan wel windstille perioden.

In de meeste bodem- en grasmonsters werden vrijwel geen aantoonbaar verhoogde gehalten koper, chroom en arseen gemeten ten opzichte van waarden die op achtergrondlocaties zijn gevonden. Hieruit werd afgeleid dat verspreiding en depositie van koper-, chroom- en arseenhoudende aërosoldeeltjes afkomstig van de houtverduurzamingsbedrijven niet leidt tot aantoonbare verontreiniging van bodem en gras rond de bedrijven. Dit is in overeenstemming met de resultaten van de verspreidings- en depositieberekeningen uit het voorafgaande onderzoek. Op één locatie zijn wel hoge gehalten koper, chroom en arseen gevonden in de bodem, maar gebleken is dat deze verontreiniging zeer waarschijnlijk een gevolg is van vroegere activiteiten.

Op basis van dit aanvullend onderzoek blijven de conclusies betreffende risico's voor omwonenden en milieu uit het eerder uitgevoerde onderzoek ongewijzigd, d.w.z. dat de gemiddelde concentraties koper, chroom en arseen in de lucht aan de rand van de bedrijfsterrein en daaromheen beneden de toxicologische adviesgrenswaarden en Maximaal Toelaatbare Risicoconcentraties voor langjarige inhalatoire blootstelling liggen en de verspreiding en depositie van koper-, chroom- en arseenhoudende aërosoldeeltjes afkomstig van de houtverduurzamingsbedrijven niet leidt tot aantoonbare verontreiniging van bodem, gewassen en oppervlaktewater rond de bedrijven.

1. Inleiding

Onlangs is door het RIVM een onderzoek verricht naar de luchtemissies en -concentraties van koper, arseen en chroom (zowel totaal als specifiek zeswaardig chroom) bij drie van de ca. dertig houtverduurzamingsbedrijven in Nederland. Dit onderzoek, uitgevoerd in opdracht van de Hoofdinspecteur van de Volksgezondheid voor de Milieuhygiëne, is beschreven in RIVM rapport nr. 609021012, getiteld "Concentraties van totaal en zeswaardig chroom, arseen en koper bij houtverduurzamingsbedrijven in Nederland. Evaluaties van de risico's voor omwonenden" (Mennen *et al.*, 1997).

In de conclusies van dit rapport werd aangegeven dat er ten aanzien van twee aspecten aanvullend onderzoek zou worden verricht. Dit aanvullend onderzoek betrof ten eerste enkele concentratiemetingen van koper, chroom en arseen in luchtstof bij de houtopslag van twee van de onderzochte houtverduurzamingsbedrijven tijdens een periode van warm, droog weer met hoge windsnelheden. Dit type weer was namelijk tijdens de monsternamedagen van het onderzoek niet voorgekomen, terwijl juist bij dergelijk weer de kans op verspreiding van (opwaaiend) stof het grootst is. Ten tweede zouden enkele bodemmonsters in de directe omgeving van de bedrijven worden genomen, welke zouden worden geanalyseerd op koper, chroom (totaal) en arseen. De bodembelasting in de omgeving van de bedrijven was namelijk berekend met een verspreidings- en depositiemodel. Bij deze berekeningen was van enkele aannames uitgegaan, waardoor de resultaten een zekere mate van onzekerheid bevatten. Het werd daarom wenselijk geacht de concentraties van koper, chroom en arseen in de bodem rond enkele bedrijven te meten. Om nadere informatie te verkrijgen over de geschatte deposities is besloten naast bodemmonsters ook grasmonsters te nemen en die te analyseren op koper, chroom en arseen.

De resultaten van het aanvullend onderzoek zullen in dit rapport worden weergegeven en bediscussieerd.

2. Uitvoering

2.1 Aanvullende stofconcentratiemetingen

Definitie meteorologische criteria

Voor de aanvullende stofmetingen was de eis dat deze zouden moeten plaatsvinden tijdens een periode van warm, droog weer met hoge windsnelheden. Om de selectie van zo'n periode mogelijk te maken is gebruik gemaakt van een bestand van ruim 5 jaar (van 1992 t/m medio 1997) met uurgemiddelde meteorologische gegevens, gemeten op het KNMI weerstation te De Bilt. Een droge dag werd gedefinieerd als een dag zonder regen, met een minimumwaarde van de uurgemiddelde relatieve vochtigheid kleiner dan 60%, een maximumwaarde van de uurgemiddelde temperatuur groter dan 12°C en een maximumwaarde van de uurgemiddelde nettostraling groter dan 125 W m⁻². In het bestand bleken 343 van de 2006 dagen (17%) aan dit criterium te voldoen. Daarnaast werd vastgesteld dat de daggemiddelde windsnelheid minimaal 3 m s⁻¹ en de maximale uurgemiddelde wind-snelheid minimaal 5 m s⁻¹ zouden moeten bedragen. Ongeveer 6% (117 dagen) bleek aan dit criterium te voldoen.

Het weerstype, dat aan de criteria 'droog' en 'winderig' voldoet, komt dus gemiddeld genomen ongeveer 6% van de tijd voor. Het bleek niet mogelijk om binnen de gestelde termijn voor het aanvullend onderzoek meer dan één geschikte dag te selecteren¹. Daarom zijn bij één van de drie bedrijven monsters genomen en wel bij een bedrijf dat CCA (koper-chroom-arseen) zouten gebruikt voor de impregnering.

Monsternamen van opwaaiend stof

De aanvullende metingen vonden plaats op 20 augustus 1997 bij bedrijf A. De monsters werden genomen van ongeveer 11:30u tot 15:00u.

In deze periode was de windrichting oostnoordoost (60 tot 90 graden) en de windsnelheid 3 tot 6 m s⁻¹ met een gemiddelde van ongeveer 5 m s⁻¹ (beide gemeten op een hoogte van 10 m). De temperatuur was ongeveer 26-27°C en de relatieve vochtigheid 50-60%.²

Luchtmonsters werden genomen met vier Medium Volume Samplers (MVS), drie Aërosol Tunnel Samplers (ATS) en één High Volume Sampler (HVS). Met de HVS, twee MVS en twee ATS werden monsters genomen benedenwinds van een opgeslagen stapel geïmpregneerd hout, op 3 tot 7 m afstand. Met de andere instrumenten (één ATS en twee MVS) werden gelijktijdig referentiemonsters genomen op ca. 25 m bovenwinds van de betreffende houtopslag, enkele meters buiten het bedrijfsterrein. Bovenwinds van het referentiepunt bevond zich een uitgestrekt wateroppervlak. Gedurende de bemonsteringen werd er geen hout geïmpregneerd of gefixeerd. De autoclaaf en de fixeerinstallatie waren

¹ Naast de eisen voor wat betreft het weerstype speelden daarbij praktische problemen een rol, zoals het feit dat de bedrijven in de zomervakantie (gedurende welke periode enkele qua weerstype geschikte dagen voorkwamen) enkele weken gesloten waren.

² Gegevens zijn afkomstig van het KNMI weerstation bij Schiphol. Tijdens de metingen zijn op de meetlocatie met behulp van een eigen weerstation ook de windrichting en windsnelheid op een hoogte van ca. 2 m gemeten. De windrichting varieerde tussen de 50 en 110 graden en de windsnelheid van 2 tot 4 m s⁻¹ met uitschieters naar 5-6 m s⁻¹. Rekening houdend met verschil in meethoogte (KNMI gegevens zijn op 10 m hoogte gemeten) en met het feit dat de KNMI waarden uurgemiddelden zijn, zijn de met het eigen weerstation gemeten waarden in overeenstemming met die van het KNMI station Schiphol.

gesloten. Ook werd er op het bedrijfsterrein nagenoeg geen hout vervoerd. In bijlage 1 is een plattegrond van het bedrijf met daarin de meetlocaties weergegeven.

Met elk van de gebruikte instrumenten zijn concentraties van aan stof- en vloeibare deeltjes (aërosol) gebonden koper, arseen en (totaal) chroom bepaald. De instrumenten verschillen voornamelijk in de grootte van aërosoldeeltjes, die al dan niet worden bemonsterd. Met de MVS wordt ongeveer de inadembare (PM10) fractie van het aërosol bemonsterd, met de ATS worden aërosoldeeltjes met een aerodynamische diameter tot ongeveer 50 µm bemonsterd en met de HVS worden aërosoldeeltjes met een aerodynamische diameter tot naar schatting 30-50 µm bemonsterd³. Op basis van deze verschillen tussen enerzijds de MVS en anderzijds de HVS en ATS, kan een indruk worden verkregen van welk percentage van de aërosoldeeltjes in de lucht tot de fijne (PM10) fractie behoren en welke tot de grovere fractie (tot ongeveer 50 µm).

Bij elk van de instrumenten worden de deeltjes in de aangezogen lucht afgevangen op een filter. De filters van de ATS en HVS zijn voor en na de bemonstering gewogen in een geconditioneerde weegruimte bij 20°C en 40% relatieve vochtigheid⁴. Uit het verschil in massa voor en na monsternamen gedeeld door het volume aangezogen lucht is per filter de concentratie aërosoldeeltjes berekend. Na weging zijn de filters, inclusief die van de MVS, geanalyseerd op koper, arseen en chroom. De meet- en analysemethoden en de bijbehorende detectielimieten worden in het kort beschreven in bijlage 3.

Van elk type van de gebruikte filters is een blanco exemplaar meegenomen naar de monsternamelocatie. Verder hebben ze alle bovengenoemde procedures doorlopen. In een apart deelonderzoek zijn enkele blanco 2,5 cm Whatman 41 papierfilters (die in de ATS worden gebruikt; zie bijlage 3) in het laboratorium in de filterhouders van de ATS geïnstalleerd en vervolgens geanalyseerd op koper, arseen en chroom. Doel van dit onderzoek was om vast te stellen of de filters door het vastdraaien van de houder mogelijk gecontamineerd worden met chroom, dat als bestanddeel van roestvrijstaal in de filterhouder voorkomt.

2.2 Aanvullend bodem- en grasonderzoek

Tijdens de in paragraaf 2.1 beschreven metingen op 20 augustus 1997 zijn bij bedrijf A ook enkele bodem- en grasmonsters genomen. Daartoe werden drie monsternamelocaties geselecteerd, één aan de westzijde op ongeveer 5 m van de terreingrens van het bedrijf en twee aan de oostzijde direct naast de terreingrens (zie bijlage 1). Op elk van deze locaties werd een oppervlak van ongeveer 25 m² uitgezet waarbinnen, verspreid over het oppervlak, 20 steken bodem en grasmonsters werden genomen. De bodemmonsters werden genomen met een graszodenmonsterboor, tot een diepte van ongeveer 5 cm. Per locatie werden de bodemmonsters bijeengevoegd in een zuurgespoelde glazen pot van 1 ℓ. De grasmonsters werden genomen door het gras met een elektrische grasschaar net boven de bodem af te knippen. Ook het gras werd per locatie bijeengevoegd in een zuurgespoelde glazen pot van 1 ℓ. De potten werden afgesloten vervoerd naar het laboratorium.

³ De gegeven afsnijd diameters zijn indicatieve waarden. Ze hangen onder andere af van de flow waarmee wordt aangezogen en de windsnelheid ter plaatse.

⁴ De filters van de MVS zijn niet gewogen, omdat de massa aërosoldeeltjes die op zo'n filter wordt afgevangen zodanig klein is ten opzichte van de massa van het filter zelf dat een nauwkeurige concentratiebepaling op basis van weging niet mogelijk is.

Op 23 september 1997 zijn op analoge wijze bodem- en grasmonsters genomen bij bedrijf C. Bij dit bedrijf werden twee locaties geselecteerd, beide aan de westzijde van het bedrijf op resp. ongeveer 15 en 25 m van de terreingrens (zie bijlage 2), aan de overzijde van de weg waaraan het bedrijf is gelegen. Er waren geen andere locaties beschikbaar aangezien het bedrijf voornamelijk is omringd door bebouwing en bestrating. Omdat de monsternamelocaties zich naast een spoorlijn bevonden, waar verhoogde concentraties van met name koper zouden kunnen voorkomen, zijn ook monsters genomen op een locatie naast het spoor op ongeveer 1 km ten zuidwesten van het bedrijf.

Verder zijn op 21 augustus 1997 op het terrein van het RIVM analoog enkele bodem- en grasmonsters genomen als referentie.

De bodemmonsters zijn tot de monstervoorbewerking bewaard in de koelcel bij 5°C. De voorbewerking bestond uit het drogen bij 40°C tot luchtdroog materiaal, gevolgd door manueel vermalen met een agaadmortier en homogeniseren. Van de monsters werd ook de totale fractie droge stof bepaald.

De grasmonsters zijn na aankomst in het laboratorium gespoeld met gedemineraliseerd water, gedroogd, vermalen en gehomogeniseerd.

De gehomogeniseerde bodem- en grasmonsters zijn vervolgens met koningswater gedestruerd, waarna de destruatens zijn geanalyseerd op koper, chroom en arseen met behulp van grafietoven AAS. Ter controle van de ontsluiting en analyse zijn een gecertificeerd bodemonster en een gecertificeerd tomatenbladmonster op dezelfde wijze behandeld.

3. Resultaten

3.1 Stofmetingen

De resultaten van de bemonsteringen van aërosoldeeltjes zijn weergegeven in Tabel 1.

Het deelonderzoek naar mogelijke contaminatie van chroom uit de filterhouder op de ATS filters wees uit, dat er inderdaad sprake was van contaminatie, variërend 0,4 tot 1,6 µg per filter. Door de grote mate van contaminatie en de spreiding daarin, zijn de gemeten concentraties chroom onvoldoende betrouwbaar (zie bijlage 3). Deze concentraties zijn daarom niet in Tabel 1 vermeld. De meting van koper met MVS-3 is waarschijnlijk eveneens verstoord door contaminatie. Mogelijk is dit ook het geval voor de metingen met MVS-1 en MVS-2; de concentraties koper gemeten met deze instrumenten zijn namelijk significant hoger dan de waarden gemeten met de andere methoden.

Tabel 1. Resultaten van de bepalingen van concentraties koper, chroom en arseen in de buitenlucht bij bedrijf A op 20 augustus 1997

Locatie	Instrument	stof ($\mu\text{g m}^{-3}$)	As (ng m^{-3})	Cu (ng m^{-3})	Cr (ng m^{-3})
3 m benedenw.	ATS-1	78	14	32	- ¹⁾
6 m benedenw.	ATS-2	40	12	24	- ¹⁾
7 m benedenw.	HVS	82	7	15	32
6 m benedenw.	MVS-1	- ²⁾	< 7	55	< 4
6 m benedenw.	MVS-2	- ²⁾	< 7	44	10
25 m bovenw.	ATS-3	63	5	20	- ¹⁾
25 m bovenw.	MVS-3	- ²⁾	< 7	507 ³⁾	8
25 m bovenw.	MVS-4	- ²⁾	< 7	16	12

¹⁾ Meting verstoord door contaminatie van chroom uit de filterhouder.

²⁾ Concentratiebepaling op basis van weging niet mogelijk vanwege geringe massa stof.

³⁾ Meting waarschijnlijk verstoord door contaminatie.

3.2 Bodem- en grasonderzoek

De resultaten van het bodem- en grasonderzoek zijn weergegeven in de Tabellen 2 en 3. In Tabel 2 staan de gehalten arseen, koper en chroom en de totale fractie droge stof van de bodemmonsters. Ter vergelijking zijn ook de achtergrondconcentraties in de bodem in Nederland, de streef- en interventiewaarden en de MTR (= Maximaal Toelaatbare Risico) concentraties voor deze componenten gegeven.

Tabel 3 bevat de gehalten arseen, koper en chroom in de grasmonsters. Ter vergelijking zijn gehalten van deze elementen in gras uit andere onderzoeken gegeven (Hemkes en Hartmans, 1973; Van Driel *et al.*, 1977; Projectgroep Zwarte Metalen, 1988; Diez *et al.*, 1992; Esser, 1995; Van Hooft, 1995).

Tabel 2. Resultaten van de analyses van bodemmonsters uit de omgeving van twee houtverduurzamingsbedrijven op koper, chroom en arseen.

Bedrijf	Locatie	As (mg kg^{-1} d.s.)	Cu (mg kg^{-1} d.s.)	Cr (mg kg^{-1} d.s.)	totale fractie droge stof (%)
A	Oost-1	133	284	287	88
	Oost-2	98	201	201	88
	West	8	25	30	93
C	15 m van bedrijf	4	8	9	97
	25 m van bedrijf	6	9	13	97
	langs spoor op 1 km	5	9	12	98
Ref.	RIVM	2	22	8	96
Achtergrondconcentraties NL ¹⁾		2 - 100	5 - 50	10 - 120	-
Streefwaarde ²⁾		29	36	100	-
Interventiewaarde ²⁾		55	190	380	-
MTR waarde ²⁾		7,1	0,55	100	-

¹⁾ Slooff *et al.*, 1987; Slooff *et al.*, 1989; Slooff *et al.*, 1990.

²⁾ Janus *et al.*, 1994.

Tabel 3. Resultaten van de analyses van grasmonsters uit de omgeving van twee houtverduurzamingsbedrijven op koper, chroom en arseen.

Bedrijf	Locatie	Concentratie in gras		
		As (mg kg ⁻¹ d.s.)	Cu (mg kg ⁻¹ d.s.)	Cr (mg kg ⁻¹ d.s.)
A	Oost-1	0,7	6,7	1,0
	Oost-2	0,6	7,4	0,6
	West	0,6	12,0	0,6
C	15 m van bedrijf	0,3	8,3	0,4
	25 m van bedrijf	0,1	7,4	0,4
	langs spoor op 1 km	0,3	9,5	0,3
Ref.	RIVM	0,2	9,2	< 0,1
Andere onderzoeken ¹⁾		0,07 - 0,7	6 - 22	-
Andere onderzoeken ²⁾		0,05 - 0,8	9 - 60	-
Andere onderzoeken ³⁾		-	3,8 - 11	<0,1 - 1,9

¹⁾ Concentraties op diverse locaties in Nederland, waaronder enkele met licht tot aanzienlijk verontreinigde bodem (Hemkes en Hartmans, 1973; Van Driel *et al.*, 1977; Projectgroep Zware Metalen, 1988; Diez *et al.*, 1992).

²⁾ Concentraties op enkele locaties met ten dele sterk verontreinigde bodem (Van Hooft, 1995).

³⁾ Concentraties in graszaden op 39 achtergrondlocaties verspreid over Noorwegen, afkomstig uit een uitgebreid referentieonderzoek naar gehalten zware metalen in diverse bodem- en gewassoorten (Esser, 1995). In Nederland is, voor zover ons bekend, geen uitgebreid onderzoek verricht naar referentieconcentraties in gras.

4. Bespreking resultaten

4.1 Stofmetingen

Uit Tabel 1 kan worden afgeleid dat de gemiddelde concentratie grof stof ⁵ (gemeten met twee ATS en één HVS) benedenwinds van de houtopslag 67 µg m⁻³ bedroeg. Deze waarde verschilt niet significant van de concentratie van 63 µg m⁻³ die bovenwinds van de houtopslag is gemeten. Hieruit kan worden afgeleid dat er tijdens de monsternamperiodes ten hoogste enkele µg m⁻³ aan grof stof deeltjes van de houtopslag af kwamen. De concentraties grof stof in Tabel 1 liggen binnen de range van PM10 concentraties, die gebruikelijk in buitenlucht worden gemeten. De gemiddelde concentratie en het 95 percentiel van de concentratie PM10 stof in Nederland bedragen resp. ca. 45 en 85 µg m⁻³ (RIVM, 1997) ⁶.

De gemiddelde concentraties arseen benedenwinds en bovenwinds van de houtopslag zijn resp. 8 en 6 ng m⁻³. Deze concentraties zijn vergelijkbaar met de waarden die in het onderzoek van Mennen *et al.* (1997) bij resp. de houtopslag en op de referentielocaties zijn gevonden en zijn van dezelfde grootteorde als die gevonden zijn in stedelijk-industriële omgevingen in Nederland (Thijssen en Huygen, 1985; Slooff *et al.*, 1990; RIVM, 1996). Ook

⁵ In dit rapport worden hiermee aerosoldeeltjes met een aerodynamische diameter van ongeveer 0,1 tot ongeveer 30-50 µm bedoeld. Deze deeltjes worden door de HVS en ATS bemonsterd.

⁶ Van grof stof zijn dergelijke concentratiegegevens niet bekend, maar aangezien grof stof meer deeltjes bevat dan PM10 stof zullen de gemiddelde concentratie en het 95-percentiel van de concentratie grof stof in Nederland hoger zijn dan deze waarden en zullen de gemeten concentraties beneden- en bovenwinds van de houtopslag waarschijnlijk ook binnen deze range vallen.

de gemiddelde concentraties chroom en koper benedenwinds en bovenwinds van de houtopslag (resp. 15 en 10 ng m⁻³ voor chroom en 34 en 18 ng m⁻³ voor koper) liggen in de range aan concentraties die in het onderzoek van Mennen *et al.* (1997) bij resp. de houtopslag en op de referentielocaties zijn gevonden. Voor koper zijn de gemeten waarden bovenwinds van de houtopslag vergelijkbaar met eerder gerapporteerde concentraties van 10 tot 25 ng m⁻³ voor achtergrondgebieden in Nederland, terwijl de gemeten waarden benedenwinds eerder vergelijkbaar zijn met de 25 tot 200 ng m⁻³ voor industriële gebieden (DCMR, 1982, 1983; Thijssen en Huygen, 1985; Slooff *et al.*, 1987). De gemiddelde concentraties chroom liggen tussen de achtergrondconcentraties in Nederland (2 tot 5 ng m⁻³; Thijssen en Huygen, 1985; Slooff *et al.*, 1989) en de concentraties in stedelijk-industriële omgevingen in België⁷ (20 tot 140 ng m⁻³; IHE, 1986) in.

Hoewel voor elk van de componenten de gemiddelde concentratie benedenwinds van de houtopslag iets hoger is dan bovenwinds, zijn de verschillen gering. De bijdrage van eventueel opwaaiend stof vanaf de houtopslag aan de concentraties van deze componenten in lucht is dus gering. Voor arseen is op 3 m van de houtopslag een iets hogere concentratie gemeten dan op 6 en 7 m. Voor koper is geen significant verschil gevonden tussen de gemiddelde concentraties op 3 resp. 6 en 7 m, in aanmerking genomen dat de metingen met de MVS mogelijk zijn verstoord door contaminatie (zie paragraaf 3.1 en bijlage 3). Voor chroom is een vergelijking niet mogelijk omdat de meting op 3 m verstoord is door contaminatie.

Voor arseen en chroom benedenwinds van de houtopslag zijn de gemiddelde concentraties gemeten met de HVS en ATS groter dan de waarden die zijn gemeten met de MVS, hoewel de verschillen gelet op de nauwkeurigheid (zie bijlage 3) amper significant zijn. Bovenwinds worden geen significante verschillen gevonden tussen de concentraties gemeten met de HVS/ATS vs. de MVS. Hieruit kan worden afgeleid dat de grovere aërosoldeeltjes afkomstig van de houtopslag mogelijk arseen en chroom bevatten (voor koper is hier vanwege het mogelijke contaminatieprobleem bij de MVS geen uitspraak over te doen). Het percentage arseen en chroom in de grove fractie is op basis van deze metingen echter niet nauwkeurig vast te stellen.

Samengevat kan gesteld worden dat de metingen in dit onderzoek uitwijzen dat de concentraties van aan aërosoldeeltjes tot ca. 50 µm gebonden koper, arseen en chroom benedenwinds van de houtopslag tijdens een periode van droog, winderig weer van dezelfde grootteorde zijn als de waarden die in het onderzoek van Mennen *et al.* (1997) zijn gevonden bij andere meteorologische omstandigheden (zie de Tabellen 2b en 3 uit het desbetreffende rapport).

⁷ Voor stedelijk-industriële gebieden in Nederland zijn geen data over chroom in lucht.

4.2 Bodem- en grasonderzoek

De resultaten in Tabel 2 geven aan dat de gehalten koper, chroom en arseen in de bodemmonsters van de twee locaties bij bedrijf C, langs de spoorlijn nabij bedrijf C en aan de westzijde van bedrijf A vergelijkbaar zijn met de waarden die in het referentiemonster zijn gevonden en met de achtergrondwaarden in de bodem in Nederland. Ook liggen de gehalten beneden de streef- en interventiewaarden voor deze componenten. De MTR concentraties voor chroom worden op deze locaties niet overschreden, terwijl de MTR concentratie voor arseen op de locatie ten westen van bedrijf A licht wordt overschreden. De indicatieve MTR van $0,55 \text{ mg kg}^{-1}$ voor koper, afgeleid op basis van indirecte effecten, wordt op al deze locaties wel overschreden, maar deze waarde ligt ver beneden de streef- en interventiewaarde en de achtergrondconcentraties in Nederland.

In de bodemmonsters aan de oostzijde bij bedrijf A zijn veel hogere gehalten koper, chroom en arseen gevonden. Behalve de interventiewaarde voor chroom, worden op deze twee locaties alle bovengenoemde waarden overschreden, hetgeen inhoudt dat hier sprake is van ernstige lokale bodemverontreiniging op grond van de Wet bodembescherming, althans tenminste in de toplaag van de bodem. Opvallend is het grote verschil tussen de concentraties aan enerzijds de oostzijde en anderzijds de westzijde van bedrijf A. Hoewel de wind gemiddeld genomen meer uit westelijke dan uit oostelijke richting waait, is het verschil tussen de frequenties van westelijke en oostelijke wind niet zodanig groot dat de verschillen in bodemconcentraties verklaard zouden kunnen worden door verspreiding en depositie van houtstofdeeltjes vanaf het bedrijfsterrein via de lucht. Een meer plausibele verklaring is dat de hoge gehalten aan de oostzijde van het bedrijf een gevolg zijn van vroegere activiteiten. Uit navraag achteraf bij het bevoegd gezag en bij het bedrijf zelf is gebleken dat bekend was dat op een deel van het industrieterrein rond bedrijf A de bodem is verontreinigd (zgn. historische bodemverontreiniging). Op laste van het bevoegd gezag zijn daartoe beheersmaatregelen genomen.

De gehalten koper, chroom en arseen in de bodemmonsters van de locaties bij bedrijf C, inclusief die langs de spoorlijn 1 km verderop, zijn ongeveer even hoog en liggen beneden de waarden die bij bedrijf A zijn gevonden, zelfs die aan de westzijde. Eén van de redenen hiervoor is het feit dat bij bedrijf A op jaarbasis 10 tot 20 maal zoveel hout wordt verwerkt dan bij bedrijf C.

Voor alle bemonsterde locaties, inclusief de referentielocatie, liggen de gehalten aan koper in de grasmonsters binnen de range aan waarden die in andere onderzoeken zijn gevonden op locaties met niet tot licht verontreinigde bodems (zie Tabel 3). Opvallend is dat de laagste gehalten zijn gemeten op de locaties aan de oostzijde van bedrijf A, waar de hoogste kopergehalten in de bodem zijn gevonden, terwijl door Van Hooft (1995) een significante correlatie is gevonden tussen kopergehalten in gras en bodem waaruit werd geconcludeerd dat gras relatief gemakkelijk koper uit de bodem opneemt. Hierbij moet worden aangetekend dat de door Van Hooft vastgestelde correlatie vooral wordt bepaald door sterk verhoogde gehalten koper in gras op zeer ernstig verontreinigde locaties met kopergehalten van 300 tot 3500 mg kg^{-1} d.s.

De arseen- en chroomgehalten in het gras op de locaties bij bedrijf A zijn hoger dan die in het referentiemonster. Hetzelfde geldt voor de chroomgehalten op de locaties bij bedrijf C. Voor

beide locaties liggen de arseen- en chroomgehaltes echter binnen de range aan waarden die in andere onderzoeken zijn gevonden op locaties met niet tot licht verontreinigde bodems (zie Tabel 3). Van Hooft (1995) concludeerde in zijn onderzoek dat arseen niet of ten hoogste in geringe mate door gras wordt opgenomen uit de bodem en dat de gehalten arseen in gras voornamelijk bepaald worden door droge depositie. Uitgaande van de gehalten in Tabel 3 en een gewasopbrengst van $0,3 \text{ kg m}^{-2}$ per jaar (Van Dijk, pers.comm.), kan dan geschat worden dat de depositieflux van arseen op de bemonsterde locaties minder dan $0,2 \text{ mg m}^{-2} \text{ j}^{-1}$ bedraagt. De werkelijke depositieflux zal hoger zijn doordat in de schatting geen rekening is gehouden met afspoelen van arseen tijdens regenbuien en tijdens de voorbewerking van de grasmonsters.

Mennen *et al.* (1997) berekenden met een verspreidingsmodel de depositiefluxen van koper, chroom en arseen binnen een afstand van ca. 200 m van de terreingrenzen van de bedrijven, op basis van de in de lucht gemeten concentraties van deze componenten. Uit deze berekeningen bleek dat van elk van de componenten de flux *ten hoogste* $1 \text{ mg m}^{-2} \text{ j}^{-1}$ bedraagt. In deze berekeningen werd geen rekening gehouden met eventuele verspreiding van grove stofdeeltjes van opgeslagen, geïmpregneerd hout. Uit de resultaten van de analyses van de grasmonsters kan worden afgeleid dat eventuele verspreiding en depositie van grove stofdeeltjes, afkomstig van de houtopslag, niet leidt tot ernstige verontreiniging van gras.

In de berekeningen van Mennen *et al.* (1997) werd ook geschat dat uitgaande van een continue belasting van de bodem gedurende 20 jaar achtereen en een opname van de metalen in de bovenste 2 cm van de bodem, de concentratietoename in de bodem voor elk van de componenten *ten hoogste* $0,8 \text{ mg kg}^{-1}$ bodem zal bedragen. Door de relatief grote variatie in achtergrondconcentraties in bodem, kan deze geschatte waarde niet kwantitatief worden vergeleken met de in de bodemmonsters gevonden gehalten. Wel kan worden geconcludeerd dat er geen tegenspraak is tussen de gevonden gehalten ten opzichte van de range aan achtergrondconcentraties en de geschatte concentratietoename van $0,8 \text{ mg kg}^{-1}$ bodem, behalve voor de twee locaties aan de oostzijde van bedrijf A waar de hoge gehalten zeer waarschijnlijk een gevolg zijn van vroegere activiteiten.

5. Conclusies

- Tijdens een periode van droog, winderig weer zijn de concentraties van aan aërosoldeeltjes (fractie tot ongeveer $50 \mu\text{m}$) gebonden koper, arseen en chroom benedenwinds van de houtopslag van dezelfde grootteorde als tijdens meer vochtige dan wel windstille perioden.
- De gehalten koper, arseen en chroom in grasmonsters nabij twee houtverduurzamingsbedrijven liggen binnen de range aan waarden die in andere onderzoeken zijn gevonden op locaties met niet tot licht verontreinigde bodems. Hieruit kan worden afgeleid dat eventuele verspreiding en depositie van (groe) aërosoldeeltjes, afkomstig van de houtopslag, niet leidt tot aantoonbare verontreiniging van gras rond de bedrijven.
- In de bodemmonsters bij bedrijf C (alle locaties) en die aan de westzijde van bedrijf A waren de gehalten koper, chroom en arseen vergelijkbaar met die in het referentiemonster en ook met de achtergrondwaarden in de bodem in Nederland. Ook werden geen streef- en interventiewaarden en MTR concentraties voor deze componenten overschreden, behalve

de indicatieve MTR concentratie voor koper die echter ver beneden de achtergrondwaarden ligt.

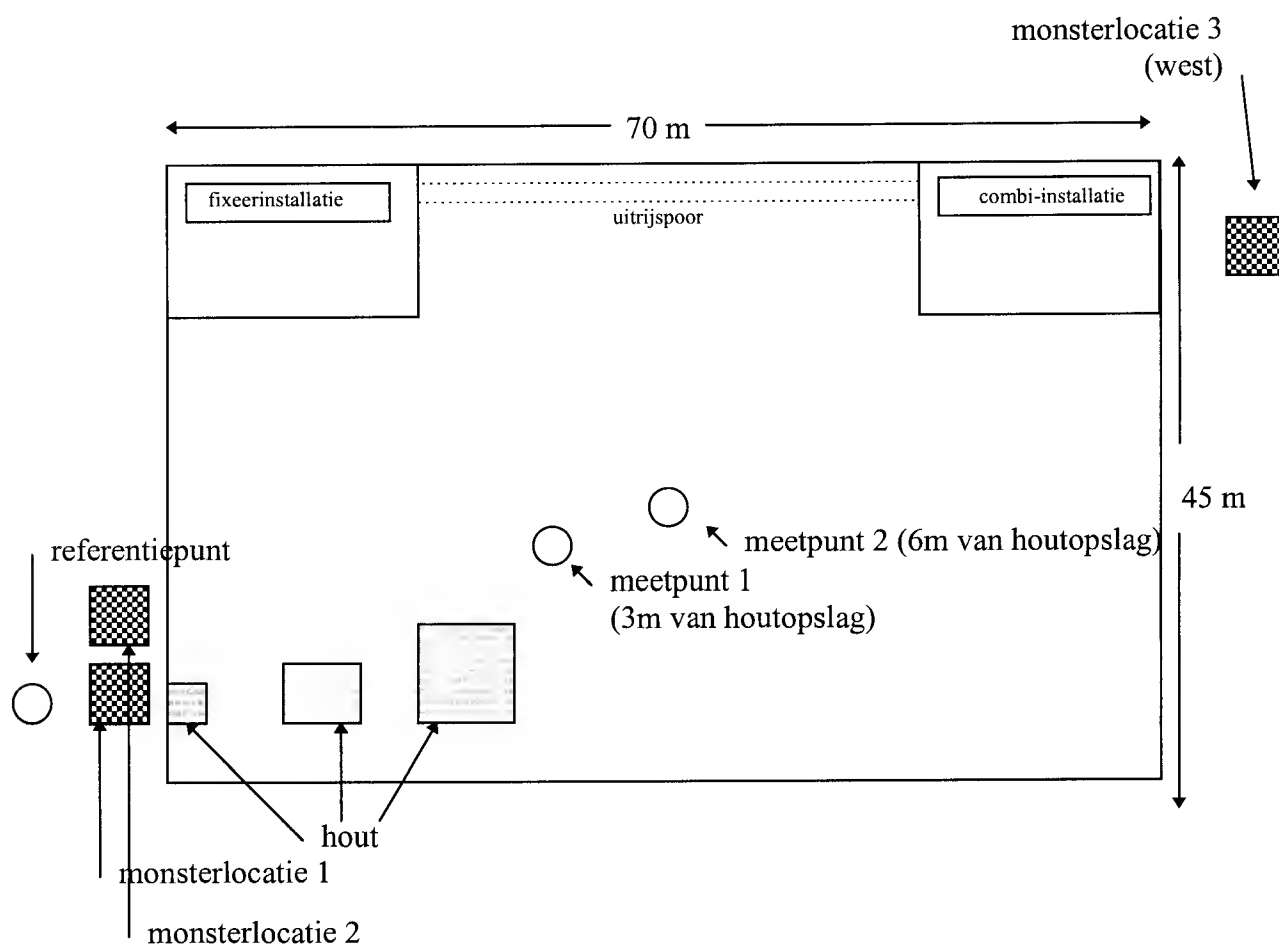
- Hoge gehalten koper, chroom en arseen werden gevonden in de bodemonsters aan de oostzijde bij bedrijf A. Behalve de interventiewaarde voor chroom, werden daarbij alle streef- en interventiewaarden en MTR concentraties overschreden, hetgeen inhoudt dat hier sprake is van ernstige lokale bodemverontreiniging op grond van de Wet bodembescherming, althans tenminste in de toplaag van de bodem. Uit navraag achteraf bij het bevoegd gezag en het bedrijf is gebleken dat de verontreiniging zeer waarschijnlijk een gevolg is van vroegere activiteiten.
- Op basis van dit onderzoek blijven de conclusies uit het rapport 609021012 ten aanzien van de luchtemissies, luchtconcentraties, verspreiding en depositie van koper, arseen en chroom bij houtverduurzamingsbedrijven en de daaruit afgeleide risico's voor omwonenden en milieu ongewijzigd.

Literatuur

- DCMR (1982) Dienst Centraal Milieubeheer Rijnmond, Kwartaalverslagen 1982, DCMR, Schiedam.
- DCMR (1983) Dienst Centraal Milieubeheer Rijnmond, Kwartaalverslagen 1983, DCMR, Schiedam.
- Diez Th., Krauss M., Wurzinger A., Bihler E. en Nast D. (1992) Schwermetall-aufnahme und -austrag von extrem belasteten böden unter pflanzenbaulicher nutzung. *Landwirtschaftliches Jahrbuch*, **69**, 51-71.
- Esser K.B. (1995) Reference concentrations for heavy metals in mineral soils, oat and orchard grass (*Dactylus Glomerata*) from three agricultural regions in Norway. *Water, Air and Soil Poll.*, **89**, 375-397.
- Hemkes O.J. en Hartmans J. (1973) Kopergehalte in gras en grond onder koperen hoogspanningsleidingen. *Tijdschrift voor diergeneeskunde*, **98**, 446-449.
- IHE (1986) Evaluatie van de gehalten aan zware metalen in de omgevingslucht in België. Instituut voor Hygiëne en Epidemiologie, 6e jaarrapport, Brussel.
- Janus J.A., Hesse J.M., en Rikken M.G.J. (1994) Aandachtstoffen in het Nederlandse milieubeleid—Overzicht 1994. Rapport nr. 601014006, RIVM, Bilthoven.
- Mennen M.G., Knol-de Vos T., Fortezza F., Piso S., Koot W., Ritsema R., Janssen P.J.C.M. en Kliest J.J.G. (1997). Concentraties van totaal en zeswaardig chroom, arseen en koper bij houtverduurzamings-bedrijven in Nederland. Evaluaties van de risico's voor omwonenden. Rapport nr. 609021012, RIVM, Bilthoven.
- Projectgroep Zware Metalen in oevergronden van Maas en zijrivieren (1988) Zware metalen in oevergronden en daarop verbouwde gewassen in het stroomgebied van Maas, Geul en Roer in de Provincie Limburg. Rapporten: 1. Algemene gegevens en samenvatting van de resultaten, 2. Documentatie van onderzoeksgegevens, 3. Bodem-gewasrelaties.
- RIVM (1996) Luchtkwaliteit, jaaroverzicht 1994. Rapport nr. 722101022, RIVM, Bilthoven.
- RIVM (1997) Luchtkwaliteit, jaaroverzicht 1995. Rapport nr. 722101028, RIVM, Bilthoven.
- Slooff W., Cleven R.F.M.J., Janus J.A. en Poel P. van der (1989) Basisdocument chroom. Rapport nr. 758701001, RIVM, Bilthoven.
- Slooff W., Cleven R.F.M.J., Janus J.A. en Ros J.P.M. (1987) Ontwerp basisdocument koper. Rapport nr. 758474003, RIVM, Bilthoven.
- Slooff W., Haring B.J.A., Hesse J.M., Janus J.A. en Thomas R. (1990) Basisdocument arseen. Rapport nr. 758701002, RIVM, Bilthoven.
- Thijssse Th.R. en Huygen C. (1985) Grootschalige achtergrondconcentraties van sporelementen en -verbindingen in de Nederlandse buitenlucht. PEO rapport 20.70-012.50, TNO rapport R85/272, TNO, Delft.
- Van Driel W., Goor B.J. van en Smilde K.W. (1977) Zware metalen in havenslib en daarop verbouwde gewassen. Instituut voor Bodemvruchtbaarheid, nota 42.
- Van Hooft W. (1995) Risico's voor de volksgezondheid als gevolg van blootstelling van runderen aan sporenelementen bij beweiding. Rapport nr. 693810001, RIVM, Bilthoven.

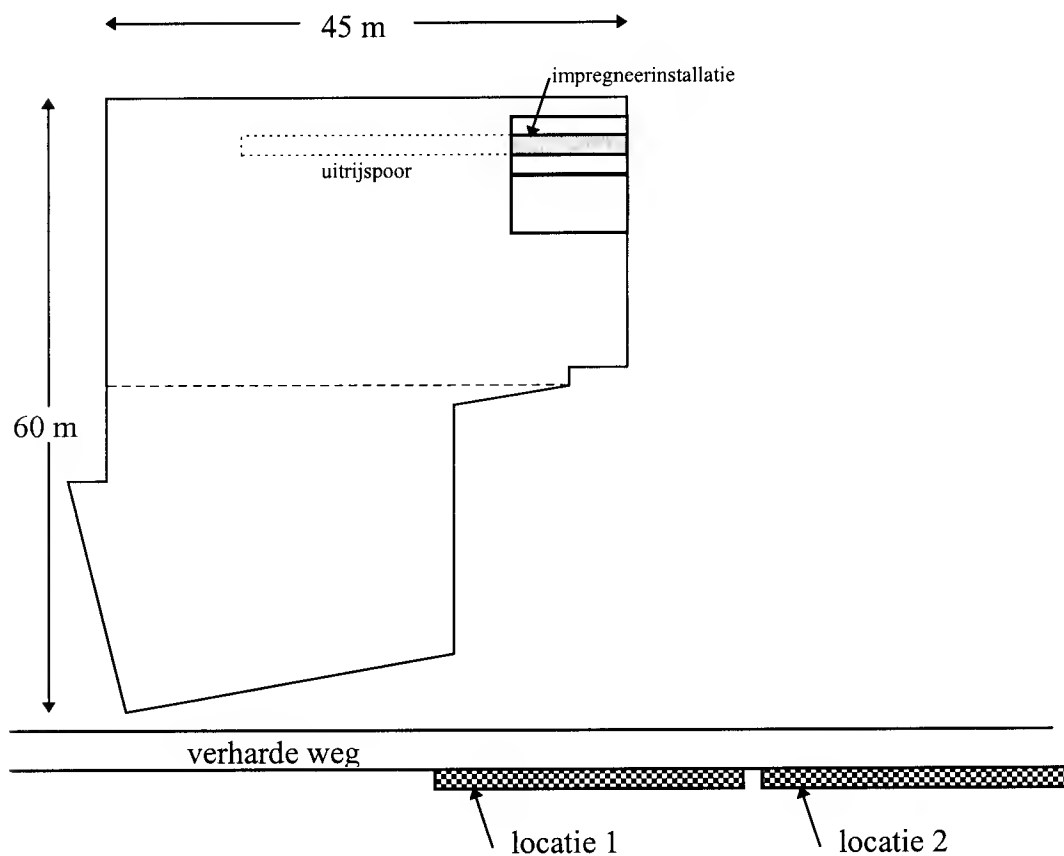
Bijlage 1 Schematische weergave van het terrein van bedrijf A

Bedrijf A



Bijlage 2 Schematische weergave van het terrein van bedrijf C

Bedrijf C



Bijlage 3 Overzicht van de gebruikte meetmethoden

De Medium Volume Samplers

Een Medium Volume Sampler (MVS) bestaat uit een messing filterhouder met een 55-mm 2.5 μm Whatman 42 filter. Lucht wordt met een flow van ca. 8 $\ell \text{ min}^{-1}$ aangezogen over het filter, waarop het aangezogen aerosol wordt afgevangen. Daarbij wordt voor windsnelheden van 1 tot 3 m s^{-1} meer dan 90% van de inadembare (PM10) fractie van het aerosol bemonsterd (Mennen *et al.*; 1997).

Na bemonstering zijn de filters opgeslagen in een klimaatkamer bij 20°C en 40% relatieve vochtigheid. De filters zijn na ontsluiting via Berghof drukvaten geanalyseerd op totaal chroom, koper en arseen met behulp van grafietoven AAS. Tevens zijn blanco filters geanalyseerd op deze componenten.

De detectielimieten voor de in dit onderzoek verrichte metingen in lucht⁸ zijn 4 ng m^{-3} voor chroom, 5 ng m^{-3} voor koper en 7 ng m^{-3} voor arseen. De nauwkeurigheid bedraagt ongeveer 10% bij concentraties 4 maal de detectielimiet. Voor koper is gebleken, dat de detectielimiet 15 ng m^{-3} bedraagt als deze wordt afgeleid uit 3 maal de standaarddeviatie van kopergehalten in blancofilters die in de bemonsteringsapparatuur zijn gemonteerd. Mogelijk speelt contaminatie door deze bemonsteringsapparatuur (*messing* filterhouders) hierbij een rol.

De High Volume Sampler

Voor de bemonstering van grof aerosol in de lucht is gebruik gemaakt van een Andersen Hi-Vol High Volume Sampler (HVS). Dit instrument is normaliter voorzien van een zogenaamde PM10-inlaat om alleen de inadembare (PM10) fractie van het aerosol te bemonsteren. Voor dit onderzoek is deze PM10-inlaat echter verwijderd, om ook aerosoldeeltjes groter dan 10 μm (grove fractie) te verzamelen. Naar schatting worden aerosoldeeltjes met een aerodynamische diameter tot 30-50 μm bemonsterd (zie paragraaf 2.1).

De aerosoldeeltjes zijn verzameld op een van tevoren gewogen 8" x 10" Whatman QM-A glass microfibre filter door lucht over dit filter aan te zuigen met een flow van 1,1 $\text{m}^3 \text{ min}^{-1}$ gedurende een periode van ca. 2 uur. Na de bemonstering is het filter ten minste één dag in de klimaatkamer opgeslagen bij 20°C en 40% relatieve vochtigheid, voordat het filter opnieuw gewogen is. Na het wegen zijn drie stukken van 7,54 mm^2 van het filter uitgeponst voor analyse van het aerosol op koper, totaal chroom en arseen. De analyses gebeurden op dezelfde wijze als voor de MVS filters. Tevens is op dezelfde wijze een blanco filter geanalyseerd op koper, totaal chroom en arseen.

De detectielimieten voor de in dit onderzoek verrichte metingen in lucht zijn 2 ng m^{-3} voor chroom, 2 ng m^{-3} voor koper en 3 ng m^{-3} voor arseen. De nauwkeurigheid bedraagt ongeveer 10% bij concentraties 4 maal de detectielimiet.

⁸ Berekend uit de analytische detectielimiet en het volume bemonsterde lucht.

De Aerosol Tunnel Sampler

Voor de bemonstering van aerosoldeeltjes in de lucht met een diameter tot ongeveer 50 μm is gebruik gemaakt van Aerosol Tunnel Samplers (ATS). Een ATS bestaat uit een tunnelbemonsteringskop met daarin een filterhouder, die voorzien is van een nozzle. De filterhouder is middels een PVC slang verbonden met een flow-geregelde pomp. Een ventilator aan de achterzijde van de tunnelbemonsteringskop zorgt ervoor dat lucht met een snelheid van ongeveer 9 m s^{-1} door de tunnel wordt gezogen. Met de geregelde pomp wordt uit deze aangezogen lucht isokinetisch een deelmonster over het filter gezogen. De aerosoldeeltjes worden op het filter afgevangen. De kop is geplaatst op een statief en kan over 360 graden ronddraaien. Boven op de kop is een windvaan gemonteerd, waarmee de voorzijde van de kop naar de heersende windrichting wordt gedraaid. Hierdoor worden ook grovere deeltjes die met de wind worden meegevoerd de kop in gezogen en, dankzij de isokinetische monsternamen over de filterhouder, op het filter verzameld.

Tijdens de metingen in dit onderzoek is gebruik gemaakt van van tevoren gewogen 2,5 cm Whatman 41 papierfilters. De flow bedroeg 35-45 $\ell \text{ min}^{-1}$ ⁹. Na de bemonstering zijn de filters ten minste één dag in de klimaatkamer opgeslagen bij 20°C en 40% relatieve vochtigheid, voordat ze opnieuw gewogen zijn. Daarna zijn de filters geanalyseerd op koper, totaal chroom en arseen op dezelfde wijze als voor de MVS filters. Tevens zijn blanco filters geanalyseerd op koper, chroom en arseen.

De detectielimieten voor de in dit onderzoek verrichte metingen in lucht zijn ca. 1 ng m^{-3} voor koper en 2 ng m^{-3} voor arseen. De nauwkeurigheid bedraagt ongeveer 10% bij concentraties 4 maal de detectielimiet. Door de contaminatieproblemen met de filterhouder ligt de detectielimiet voor chroom boven de 100 ng m^{-3} , hetgeen veel te hoog is voor dit onderzoek.

⁹ Idealiter zou de flow 40 $\ell \text{ min}^{-1}$ moeten zijn, maar technische problemen verschilden de flows van de drie gebruikte ATS enigszins. De verschillen leiden tot een onderlinge additionele meetfout van maximaal 10 %.

Bijlage 4 Verzendlijst

1-5	Ir. P.J. Verkerk, Hoofdinspecteur van de Volksgezondheid voor de Milieuhygiëne
6	Dr.Ir. B.C.J. Zoeteman, plv. Directeur-Generaal Milieubeheer
7-26	Dr. J.H. Dewaide, Inspecteur Inspectie Milieuhygiëne Zuid te Eindhoven
27	Ing. G.L.M. Majoor, Inspectie Milieuhygiëne Zuid te Eindhoven
28-29	Mr. J. Tesink, Inspecteur Inspectie Milieuhygiëne Noord te Groningen
30	Dr. W.F.J. Huurdeman, Inspectie Milieuhygiëne Noord te Groningen
31-32	Dr.Ir. J.F. van Kessel, Inspecteur Inspectie Milieuhygiëne Oost te Arnhem
33-34	Ir. A.H. Bussemaker, Inspecteur Inspectie Milieuhygiëne Noord-West te Haarlem
35-36	Ir. W. Klein, Inspecteur Inspectie Milieuhygiëne Zuid-West te Rijswijk
37	Dr. C.J.M. van den Bogaard, ministerie van VROM/HIMH te Den Haag
38	Ministerie van VROM/DGM/IBPC/P te Den Haag
39	Ir. C. Boon, Vereniging van Houtimpregneerinstallaties in Nederland te Zeist
40	A. van Bergen, raadsfractie De Groenen te Nijmegen
41	G. Blankendaal, GZB NV te Bunnik
42	J. Heumer, Commissie Toelating Bestrijdingsmiddelen te Waneningen
43	Ir. P. Hofschreuder, Landbouw Universiteit Wageningen te Wageningen
44	Drs. H.A.W. Jans, Bureau Medische Milieukunde Stadsgewest Breda te Breda
45	Dr.Ir. F.J. Jongeneelen, IndusTox Consult te Nijmegen
46	Drs. M. Koene, Stichting Natuur&Milieu te utrecht
47	Drs. Ing. J.J.M. Sikking, Nederlands Normalisatie Instituut te Delft
48	Depot Nederlandse Publicaties en Nederlandse Bibliografie
49	Directie RIVM
50	Dr.Ir. G. de Mik
51	Ir. F. Langeweg
52	Ir. R. van de Berg
53	Ir. A.H.M. Bresser
54	Drs. L.H.M. Kohsiek
55	Dr. W.H. Könemann
56	Dr. Ir. D. van Lith
57	Dr. J. Meulenbelt
58	Dr. A. Opperhuizen
59	Ir. H.J. van de Wiel
60	Dr.Ir. E. Lebrecht
61	Drs. H.J.Th. Bloemen
62	Ing. P.J.C.M. Janssen
63	Dr. A.v.d. Meulen
64	Dr.Ir. M.N. Pieters
65	Dr. G.J.A. Speijers
66	Dr. M.P. van Veen
67-73	Auteurs
74	SBD/Voorlichting & Public Relations

75	Bureau Rapportenregistratie
76	Bibliotheek RIVM
77-96	Bureau Rapportenbeheer
97-120	Reserve exemplaren